

核共鳴散乱ビームライン

◇核共鳴散乱SG

東京大学 工学部
依田 芳卓

核共鳴散乱は原子核の準位による共鳴散乱であり、これまで行われてきたメスバウアー実験の単なる延長にとどまらず放射光の特性とあいまってさまざまな発展・展開が考えられている。以下に立ち上げ当初に実施が計画されている実験を挙げる。

強度相関・干渉実験

複数の光子による干渉現象ともいえる強度相関により光源のサイズに起因する空間的コヒーレンスとエネルギースペクトルに起因する時間的コヒーレンスが測定される。1956年にR. Hanbury BrownとP. Q. Twissによって可視光による強度相関が観測された。観測領域中のコヒーレントセルの数が多くなると相関を持たない光子対が増えるため相関の効果は小さくなる。そのため波長が短くなると観測は困難となるがX線領域での強度相関が第三代光源であるMR放射光において菊田らのグループにより初めて測定された。この実験では電子散乱による高分解能モノクロメータが用いられ、測定された値は光源のサイズとパルス長の関数となっている。

SPring-8では α -Fe₂O₃からの核共鳴散乱線を用いた強度相関実験が可能である。核共鳴散乱線のコヒーレンス時間（～数10nsec）は光源のパルス長に比べ十分長いので、時間的コヒーレンスによる相関の低下がなくなり、光源サイズが独立して測定可能になる。電子散乱による高分解能モノクロメータの結果とあわせれば光源のサイズとパルス長が独立して求められる。強度相関は光子統計を反映しておりX線レーザー等が開発された際のビーム診断にも有効である。また強度相関の実験としてはX線パラメトリック・ダウンコンバージョンによって得られる2光子も利用する。

この核共鳴散乱線の時間的コヒーレンスの高さは可干渉距離にして数10mにも及ぶ。そのためこれまで光路差が数10 μ mに限られていたX線干渉計の実験配置に大きな自由度をもたらす。SPring-8では垂直入射反射を利用したX線キャビティの形をした干渉計を構築しその特性を調べるとともに散乱の位相を決定するのに利用する。

核共鳴非弾性散乱分光実験

核共鳴非弾性散乱分光は瀬戸らにより初めて行われた。高分解能モノクロメータにより数meVの幅に分光したX線を共鳴核を含む試料に入射し、フォノンの生成・消滅を伴う核励起が生じた後の時間遅れの信号を測定する。10⁻⁶から10⁻⁹eVのエネルギー幅をもつ核の準位をエネルギーアナライザーとして用いているので分解能は高分解能モノクロメータのエネルギー幅によって決まるが、入射X線のエネルギーをスキャンすることによりフォノン状態密度分布を得る。この手法の特徴として共鳴核をもつ元素に特定したフォノン状態密度が求められる点と、液体や気体の運動状態を測定できる点が挙げられる。SPring-8では

ヘモグロビン生体高分子、磁性微粒子、 DyFeO_3 等の試料について十分な信号強度を得ることが出来る。共鳴核を含まない試料に対しても散乱されたX線を共鳴核を含むフォイルで分光することにより試料全体のフォノン状態密度に関する知見を得ることができ、中性子散乱では測定困難な液体水素や ^3He 等の試料の測定が可能である。

さらにSPring-8においては角度分解型核共鳴非弾性散乱実験を行う。これまでは全立体角に散乱される振動スペクトル測定を行っているので、運動量を積分した形のスペクトルが求められている。これに対して、立体角を制限し内部転換過程を経ない核共鳴非弾性散乱を測定することにより、振動スペクトルの運動量依存性を求めることが可能となる。またこの時得られる時間スペクトルより電子状態と振動状態との相関に関する情報が得られることになる。

時間領域メスバウアー分光

これまで放射性線源を用いて行われてきたメスバウアー分光に対し、放射光の高指向性、偏光特性、パルス特性を利用した特色ある研究が予定されている。

・放射光核共鳴励起による内部転換電子放射の測定

放射光により核共鳴励起された内部転換電子放射を測定し、表面最外層における原子尺度電磁場分布、原子間相互作用、微小内殻準位シフトなどについて、他の手段では得ることのできない知見を得る。測定対象としては ^{73}Ge 単結晶面、 ^{73}Ge 単原子吸着相（例えばGe/Siヘテロ界面）、物理吸着 ^{83}Kr 単原子層などが挙げられる。検出器としては、広い立体角の内部転換電子放射を高い捕集効率で検出する目的では電子検出用APD素子を用い、角度分解された高時間分解能測定は従来から開発を続けているストリークカメラ方式を採用する予定である。

・核共鳴前方散乱を用いた超高压下での超微細構造の測定

ダイヤモンドアンビルセルは100GPa以上の超高压を発生させることができるが、試料の直径が数10 μm 、質量が数 μg と非常に微量である。放射性線源を用いた通常のメスバウアー分光では、 γ 線は線源から等方的に放射されるため、このように小さな試料の測定は困難である。放射光の強い強度と指向性を用いることにより、このような微量の試料の物性を効率良く測定することができる。

・磁場変調タイプのX線干渉計実験

磁場反転が核共鳴散乱線の位相状態に与える変化をX線干渉計を用いて観測する。X線干渉計の光路上に配置された ^{57}Fe を含む散乱体をパルス磁場発振器により内部磁場をある時刻で反転させる。この時の磁場反転による核共鳴線の位相変化をもう一方の光路からやってくるX線を参照波として干渉させることで観測する。

さらに次のような実験も予定している。

・ ^{57}Fe のエンリッチ度に対する $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ のブラッグ反射の変化の観測に基づく統計的回折理論の検証

・強磁性アモルファスリボンによる核共鳴ハローの観察・磁気二重共鳴がある時の核共鳴散乱の時間追跡

・高分解能（ $\sim\mu\text{eV}$ ）X線分光実験

1. 当初の目標に対する現段階での実験装置の達成度（又は満足度） 「50%」

◇表面界面構造SG

東京大学 物性研究所

高橋 敏男

物質の表面・界面の構造を調べることは基礎科学研究と工業的な応用の両方の面から関心を集めている課題である。放射光によるX線回折法は表面・界面研究の有力な手法の一つであり、日本でもこの手法を用いた研究成果が数多くあがっている。しかしながら表面・界面X線回折法には、その散乱強度が固体結晶からの散乱強度に比べて5～6桁弱いという問題がある。このため第二世代光源では、例えば、その場観察や軽元素を含む系の測定などがきわめて難しい状況であった。また測定のために長時間のビームタイムが必要になるという問題もある。SPring-8の挿入光源は、既存の光源より数桁強力なものである。この光源を利用すれば上述の問題はほぼ解決し、放射光による表面・界面研究に新たな局面がひらけることが期待できる。表面界面構造サブグループではSPring-8を利用した種々の実験課題を検討してきた。それらのうちからの具体的なものをいくつかあげると以下のようになる。

1. 半導体表面の微小格子歪み

半導体表面や異種物質界面に生じる応力は、結晶成長や固体の物性に大きな影響を与える。ここでは、超高真空中で清浄な半導体表面に極微量の異種原子を吸着させたときに生じる格子の歪みについて調べる。実験配置は、表面に敏感な非対称ブラッグケースの反射配置とする。この状況下で半導体表面に微量の異種元素を蒸着させつつ回折強度曲線を測定して、歪みの変化のその場観察を行う。

2. SiO₂/Si界面における酸化過程のその場観察

Siのデバイス開発においては表面の酸化膜が重要な役割を果たす。近年のデバイスの集積化にともない、酸化膜の評価や酸化機構の解明の重要性が増してきている。Siの酸化はSiO₂とSiの界面で進むため、透過能の強いX線はこの系の研究に適している。そこでX線を用いてSiの酸化過程のその場観察を予定している。X線の反射率測定から酸化膜の厚さと密度および界面のステップ、テラス、アイランドの構造を調べ、CTR散乱強度から界面における酸化サイト等の原子構造を調べる予定である。

3. 金属表面に吸着した軽元素分子の吸着構造

RuやPtの金属清浄表面に水や一酸化炭素が吸着すると、結晶の周期とは異なる超構造があらわれる。電子線回折やSTMでこれらの系の構造を解析することは困難であり、表面X線回折法も既存の光源を使う限り対象が軽元素分子であるため期待が持てない。SPring-8の挿入光源を利用することによってこれらの系の構造をX線回折の手法で決めることができると考えられる。

4. 禁制反射におけるX線定在波の可能性

X線定在波法は、表面・界面における原子配列を正確に決めることの出来る手法である。

この手法をダイヤモンド型構造や閃亜鉛型構造の結晶の(100)面に対して適用する。これらの結晶の100反射は禁制反射であるが、実際には外殻電子の非対称分布のため、弱いながらも反射を生じる。具体的にはGe結晶の100反射のX線定在波の可能性を調べる。

5. 金属表面の酸化膜・腐食膜生成過程の動的観察

金属表面で生成される酸化膜や腐食膜の初期段階の生成物は、その後の金属の耐腐食性を規定するといわれている。従ってこの生成物を同定し生成過程を明らかにすることは、工業的見地から極めて重要である。ここでは鋼板、アルミニウム合金板、鍍金鋼板等を各種のガスで酸化・腐食させながら極薄膜の初期生成過程をX線を用いて時分割測定することを計画している。

6. X線回折法による表面・界面構造の精密測定

清浄な半導体や金属表面、表面に異種原子を1原子層程度蒸着したときにできる表面構造、埋もれた界面構造には、表面・界面に固有なさまざまな構造があらわれる。それらの構造の原子配列は表面X線回折法で決めることができるが、既存の光源では測定時間が不足気味であった。SPring-8で測定を行えば、信頼性の高いデータを大量にとることが可能になる。そのデータを解析することによって、従来この手法ではあまり議論されなかった表面・界面における原子の格子振動や電子密度分布を明らかにしていく。

7. 表面界面磁気構造の研究

磁性体結晶表面や薄膜・多層膜において出現する表面界面に特有な磁気構造をX線磁気散乱により研究する。試料の温度や層の厚さを変化させることによって生じる磁気的な構造相転移を観察する。

以上の計画の大半は、核共鳴グループとの併設ビームラインで行うことを前提にして、大気中もしくは簡便な真空槽中でできるものを取り上げており、本SGの研究計画の一部である。併設ビームラインで利用できる回折計の仕様は大気中で実験を行うにしても制約が多い。表面・界面の実験を本格化させるためには、超高真空槽と回折計を組み合わせた表面界面構造SG専用の実験装置が必要不可欠である。この意味で、本SGの当初の目標に対する現段階での実験装置の達成度は極めて低いと言わざるを得ない。

高圧構造物性ビームライン

◇「極限構造物性」SG

お茶の水女子大学 理学部
浜谷 望

BL10XU「高圧構造物性」ビームラインはエネルギー範囲5-60keVをカバーするSPring-8標準の真空封止アンジュレーター光源と、標準仕様の2結晶分光器を備えている。単色化した20-60keVの光をハッチ内に置く一次元垂直方向集光ブラッグフレネルレンズ(BFL)(スーパーミラーの使用はオプション)で集光して、ダイヤモンドアンビルセル(DAC)内の直径20